

# BREVET D'INVENTION

CERTIFICAT D'UTILITÉ - CERTIFICAT D'ADDITION

## COPIE OFFICIELLE

Le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle certifie que le document ci-annexé est la copie certifiée conforme d'une demande de titre de propriété industrielle déposée à l'Institut.

Fait à Paris, le 12 OCT. 2004

Pour le Directeur général de l'Institut  
national de la propriété industrielle  
Le Chef du Département des brevets

Martine PLANCHE

DOCUMENT DE PRIORITÉ

PRÉSENTÉ OU TRANSMIS  
CONFORMÉMENT À LA  
RÈGLE 17.1.a) OU b)

INSTITUT  
NATIONAL DE  
LA PROPRIÉTÉ  
INDUSTRIELLE

SIEGE  
26 bis, rue de Saint-Petersbourg  
75800 PARIS cedex 08  
Téléphone : 33 (0)1 53 04 53 04  
Télécopie : 33 (0)1 53 04 45 23  
www.inpi.fr



26 bis, rue de Saint Pétersbourg - 75800 Paris Cedex 08

Pour vous informer : INPI DIRECT

N° Indigo 0 825 83 85 87

0,15 € TTC/mn

Télécopie : 33 (0)1 53 04 52 65

Réservé à l'INPI

# BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITÉ

Code de la propriété intellectuelle - Livre VI



N° 11354\*03

## REQUÊTE EN DÉLIVRANCE page 1/2

BR1


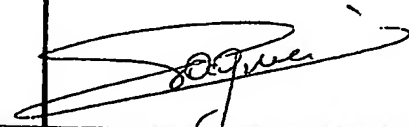
Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire

DB 540 © W / 030103

<b>REMISE DES PIÈCES</b> DATE <b>29 OCT 2003</b> LIEU <b>75 INPI PARIS</b> N° D'ENREGISTREMENT <b>0312687</b> NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI DATE DE DÉPÔT ATTRIBUÉE PAR L'INPI <b>29 OCT. 2003</b>		<b>1 NOM ET ADRESSE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE À QUI LA CORRESPONDANCE DOIT ÊTRE ADRESSÉE</b>  CABINET LAVOIX 2, Place d'Estienne d'Orves 75441 PARIS CEDEX 09	
<b>Vos références pour ce dossier (facultatif)</b> BFF 03P0447			
<b>Confirmation d'un dépôt par télécopie</b>		<input type="checkbox"/> N° attribué par l'INPI à la télécopie	
<b>2 NATURE DE LA DEMANDE</b>		<b>Cochez l'une des 4 cases suivantes</b>	
Demande de brevet		<input checked="" type="checkbox"/>	
Demande de certificat d'utilité		<input type="checkbox"/>	
Demande divisionnaire		<input type="checkbox"/>	
Demande de brevet initiale		N° _____ Date _____	
ou demande de certificat d'utilité initiale		N° _____ Date _____	
Transformation d'une demande de brevet européen		<input type="checkbox"/>	
Demande de brevet initiale		N° _____ Date _____	
<b>3 TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum)</b> Procédé de fabrication de pastilles de combustible nucléaire.			
<b>4 DÉCLARATION DE PRIORITÉ OU REQUÊTE DU BÉNÉFICE DE LA DATE DE DÉPÔT D'UNE DEMANDE ANTÉRIEURE FRANÇAISE</b>		Pays ou organisation _____ N° _____ Date _____ Pays ou organisation _____ N° _____ Date _____ Pays ou organisation _____ N° _____ <input type="checkbox"/> S'il y a d'autres priorités, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»	
<b>5 DEMANDEUR (Cochez l'une des 2 cases)</b>		<input checked="" type="checkbox"/> <b>Personne morale</b> <input type="checkbox"/> <b>Personne physique</b>	
Nom ou dénomination sociale		SOCIETE FRANCO-BELGE DE FABRICATION DE COMBUSTIBLE - FBFC	
Prénoms			
Forme juridique		Société en Nom Collectif	
N° SIREN		300521754	
Code APE-NAF			
Domicile ou siège		Tour Areva - 1, Place de la Coupole	
Rue			
Code postal et ville		92400 COURBEVOIE	
Pays		FRANCE	
Nationalité		Française	
N° de téléphone (facultatif)		N° de télécopie (facultatif)	
Adresse électronique (facultatif)			
<input type="checkbox"/> S'il y a plus d'un demandeur, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»			

Remplir impérativement la 2<sup>ème</sup> page

BEST AVAILABLE COPY

REMISE DES PIÈCES DATE <b>29 OCT 2003</b> LIEU <b>75 INPI PARIS</b> N° D'ENREGISTREMENT <b>0312687</b> NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI		Réservé à l'INPI	DB 540 W / 030103
<b>6 MANDATAIRE (s'il y a lieu)</b> Nom _____ Prénom _____ Cabinet ou Société _____ N° de pouvoir permanent et/ou de lien contractuel _____ Adresse Rue _____ Code postal et ville <b>75441 PARIS CEDEX 09</b> Pays <b>FRANCE</b> N° de téléphone (facultatif) <b>01 53 20 14 20</b> N° de télécopie (facultatif) <b>01 48 74 54 56</b> Adresse électronique (facultatif) <b>brevets@cabinet-lavoix.com</b>		<b>CABINET LAVOIX</b>  <b>2 Place d'Estienne d'Orves</b>	
<b>7 INVENTEUR (S)</b> Les demandeurs et les inventeurs sont les mêmes personnes <input type="checkbox"/> Oui <input checked="" type="checkbox"/> Non : Dans ce cas remplir le formulaire de Désignation d'inventeur(s)		<b>Les inventeurs sont nécessairement des personnes physiques</b>	
<b>8 RAPPORT DE RECHERCHE</b> Établissement immédiat ou établissement différé <input checked="" type="checkbox"/> <input type="checkbox"/> Paiement échelonné de la redevance (en deux versements) <input type="checkbox"/> Oui <input type="checkbox"/> Non		<b>Uniquement pour une demande de brevet (y compris division et transformation)</b>  <b>Uniquement pour les personnes physiques effectuant elles-mêmes leur propre dépôt</b>	
<b>9 RÉDUCTION DU TAUX DES REDEVANCES</b>		<b>Uniquement pour les personnes physiques</b> <input type="checkbox"/> Requête pour la première fois pour cette invention (joindre un avis de non-imposition) <input type="checkbox"/> Obtenue antérieurement à ce dépôt pour cette invention (joindre une copie de la décision d'admission à l'assistance gratuite ou indiquer sa référence) : AG [ ] [ ] [ ] [ ]	
<b>10 SÉQUENCES DE NUCLEOTIDES ET/OU D'ACIDES AMINÉS</b> Le support électronique de données est joint <input type="checkbox"/> La déclaration de conformité de la liste de séquences sur support papier avec le support électronique de données est jointe <input type="checkbox"/> Si vous avez utilisé l'imprimé «Suite», indiquez le nombre de pages jointes _____		<input type="checkbox"/> Cochez la case si la description contient une liste de séquences	
<b>11 SIGNATURE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire)</b> B. DOMENEGO n° 00-0500 		<b>VISA DE LA PRÉFECTURE OU DE L'INPI</b> 	

L'invention concerne un procédé de fabrication de pastilles de combustible nucléaire renfermant principalement du dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  et utilisées pour la fabrication d'éléments de combustible pour un réacteur nucléaire.

5 Les éléments de combustible pour les réacteurs nucléaires et en particulier pour les réacteurs nucléaires refroidis par de l'eau sous pression comportent généralement des tubes de grande longueur fermés à leurs extrémités dans lesquels sont empilées des pastilles de combustible dont le diamètre est généralement un peu inférieur à 10 mm et la longueur comprise  
10 entre 10 mm et 20 mm.

Les pastilles de combustible sont obtenues par frittage, généralement vers  $1700^\circ\text{C}$ , d'une matière contenant principalement du dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  qui est obtenue à partir d'une poudre issue d'un procédé de conversion d'hexafluorure d'uranium  $\text{UF}_6$ .

15 On connaît différents procédés pour obtenir par conversion de l'hexafluorure d'uranium  $\text{UF}_6$ , des oxydes d'uranium et en particulier le dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$ . On connaît en particulier un procédé de conversion dit "procédé de conversion voie sèche" de l'hexafluorure d'uranium gazeux qui est un procédé de pyrohydrolyse de l'hexafluorure d'uranium par de la vapeur  
20 d'eau. Ce procédé permet d'obtenir des oxydes dont la composition moyenne peut s'exprimer par la formule  $\text{UO}_{2+x}$ . Ces oxydes comportent principalement le dioxyde  $\text{UO}_2$  et d'autres oxydes en proportion variable tels que  $\text{U}_3\text{O}_8$  ou  $\text{U}_3\text{O}_7$ , suivant la conduite du procédé de conversion de l' $\text{UF}_6$ , la poudre obtenue par les procédés voie sèche est une poudre peu dense  
25 (densité généralement inférieure à  $1\text{g/cm}^3$ ) constituée par des cristallites de très petites dimensions ( $0,1\text{ }\mu\text{m}$  à  $0,4\text{ }\mu\text{m}$ ) plus ou moins agglomérées entre elles. Une telle poudre présente une coulabilité médiocre (mesurée par les essais habituels de coulabilité).

30 Dans le cadre de la fabrication des pastilles de combustible, il est nécessaire de réaliser, préalablement au frittage, la fabrication de pastilles crues, par compression à froid d'une matière granulaire. La fabrication des pastilles crues par compression nécessite d'introduire la matière granulaire dans des matrices cylindriques étroites et profondes, à des cadences éle-

vées dans le cas d'une fabrication industrielle, de sorte que la matière granulaire pour la fabrication des pastilles crues qui seront soumises ensuite au frittage doit présenter une bonne coulabilité et des propriétés permettant d'obtenir des pastilles crues suffisamment résistantes pour subir des manipulations avant le frittage.

On connaît divers procédés (par exemple ajout de poudre d' $U_3O_8$  de qualité bien définie tel que décrite par exemple dans le brevet français 2 599 883 et le brevet européen 0249 549) pour améliorer les caractéristiques mécaniques des pastilles crues. Ces procédés sont généralement fondés sur l'addition en quantité réglée d'un oxyde tel qu' $U_3O_8$  ou  $U_3O_7$  à l' $UO_2$ . Généralement, on doit également incorporer à la matière granulaire pour la fabrication des pastilles crues, des additifs tels que des lubrifiants et des matières porogènes qui permettent de faciliter la mise en forme des pastilles crues et de régler la porosité et la densité des pastilles de combustible frittées.

Les poudres d'oxyde d'uranium obtenues par les procédés de conversion de l'hexafluorure d'uranium et en particulier les procédés voie sèche ne peuvent être utilisées sans transformation pour la fabrication des pastilles crues. Un grand nombre d'opérations sont généralement nécessaires pour obtenir une matière granulaire de bonne coulabilité, ayant une densité sensiblement supérieure à la densité de la poudre et présentant les caractéristiques voulues pour l'obtention de pastilles crues de bonne qualité. Il est nécessaire en particulier d'augmenter et d'homogénéiser la granulométrie des poudres, pour obtenir des particules d'une dimension suffisante et d'une forme améliorant la coulabilité et la compressibilité.

De manière classique, on réalise, dans un premier temps, dans l'atelier de conversion, un tamisage des poudres obtenues directement par le procédé de conversion voie sèche et / ou le broyage de particules dures (par exemple fluorées) retenues lors du tamisage, l'homogénéisation des poudres, leur chargement et leur stockage en vue de leur utilisation dans l'atelier de pastillage qui peut être ou non situé à proximité de l'atelier de conversion.

On réalise ensuite le chargement des poudres dans le mélangeur de l'atelier de pastillage, avec l'incorporation d'additifs, en particulier de porogène-

nes, puis le mélange et l'homogénéisation des poudres et additifs, et le pré-compactage du mélange des poudres dans une presse pour obtenir des éléments pré-compactés. Les éléments pré-compactés sont ensuite soumis à une opération de granulation dans un broyeur ou un granulateur, puis à  
5 une opération de sphéroïdisation pour obtenir une forme régulière des particules proche d'une forme sphérique, dans un récipient d'agitation. On ajoute ensuite un lubrifiant qui est mélangé aux particules par agitation avant de réaliser la compression pour l'obtention de pastilles crues qui seront ensuite frittées.

10 Le passage de la poudre directement obtenue par le procédé de conversion d' $UF_6$  à la matière particulaire qui peut être comprimée sous la forme de pastilles crues nécessite donc de nombreuses opérations qui doivent toutes être réalisées dans des conditions satisfaisantes pour permettre l'obtention de pastilles crues et de pastilles frittées de bonne qualité. L'en-  
15 semble des opérations nécessite de nombreux dispositifs différents tels que des mélangeurs, des presses (ou compacteurs à rouleaux) et des broyeurs granulateurs sur lesquels les causes de panne sont multiples. Le risque principal rencontré est la rupture d'un tamis à la sortie d'un granulateur qui est nécessaire pour assurer une granulométrie homogène et satisfaisante  
20 de la matière particulaire utilisée pour la fabrication des pastilles crues. Dans le cas d'une rupture de tamis, les produits obtenus doivent être retraités afin d'éliminer les résidus métalliques provenant de la destruction du tamis et de garantir une granulométrie convenable pour l'opération de fabrication des pastilles.

25 On connaît également des procédés de fabrication de poudre d'oxyde d'uranium par voie humide pouvant mettre en œuvre un traitement par atomisation d'une suspension. Les poudres obtenues par les procédés "voie humide" ont des caractéristiques de densité et de coulabilité supérieures aux poudres obtenues par les procédés voie sèche et des caractéristiques de  
30 granulométrie que l'on ne peut obtenir actuellement, directement par les procédés voie sèche connus. Toutefois, ces poudres doivent encore subir des traitements de conditionnement avant d'être mises sous forme de pastilles crues soumises ensuite au frittage. En outre, on souhaite de plus en plus

remplacer les procédés voie humide par les procédés voie sèche pour des raisons liées à la sûreté et à l'environnement, et il devient nécessaire d'assurer l'approvisionnement des usines utilisant traditionnellement des produits obtenus par voie humide avec des poudres d' $\text{UO}_2$  obtenues par voie sèche.

5        En particulier, dans le cas de la fabrication de combustible mixte MOX constitué d'un mélange de dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  et de dioxyde de plutonium  $\text{PuO}_2$ , il devient nécessaire d'assurer l'approvisionnement des unités de fabrication en poudres d' $\text{UO}_2$  obtenues par voie sèche.

10        Les procédés de fabrication de pastilles d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium utilisés actuellement nécessitent l'utilisation de poudres d' $\text{UO}_2$  ayant une bonne coulabilité et composées de granulés préférentiellement de forme régulière, une densité élevée, proche de  $2\text{g/cm}^3$ , une granulométrie réglée à une valeur inférieure à  $250\text{ }\mu\text{m}$  pour obtenir un bon mélange de l'oxyde d'uranium et de l'oxyde de plutonium et des caractéristiques permettant d'obtenir des pastilles crues ayant une bonne résistance mécanique.

15        Afin de conférer aux poudres voie sèche des caractéristiques satisfaisantes de densité, de coulabilité et de granulométrie, on a proposé d'utiliser un procédé d'atomisation séchage des poudres d'oxyde d'uranium obtenues par voie sèche qui peut être mis en œuvre industriellement sur une poudre  
20 d'oxyde d'uranium contenant une teneur limitée en isotope  $\text{U}_{235}$ .

On a proposé également, pour améliorer la coulabilité, la densité et la granulométrie des poudres voie sèche, de fabriquer des granulés par précompactage puis de réaliser une granulation. Cependant, les granulés obtenus ont une taille trop élevée (jusqu'à  $1200\text{ }\mu\text{m}$ ) pour permettre un mélange  
25 intime avec la poudre d'oxyde de plutonium. Il est donc nécessaire d'effectuer des opérations ultérieures de granulation ou de broyage avec un tamisage des granulés. Les techniques de broyage classiques altèrent la coulabilité et font baisser la densité des produits. En outre, les opérations sont complexes et présentent un certain danger dans la mesure où les fils des  
30 tamis utilisés peuvent subir des ruptures, de sorte que des déchets peuvent se retrouver mélangés aux granulés, ce qui peut causer des dégâts aux installations de pastillage utilisant les granulés. De manière plus générale, en dehors de l'addition d'oxyde de plutonium  $\text{PuO}_2$  dans le cadre de la fabrica-

tion du combustible MOX, on peut être amené à incorporer de nombreux additifs aux poudres d' $\text{UO}_2$  obtenues par voie sèche. De tels additifs peuvent être par exemple des matériaux absorbants et modérateurs ou des matériaux combustibles fertiles tels que  $\text{ThO}_2$  ou des oxydes de terres rares tels que  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Er}_2\text{O}_3$ . Pour réaliser l'incorporation et le mélange de tels additifs à la poudre d' $\text{UO}_2$  obtenue par voie sèche, il est nécessaire de réaliser des traitements préalables de conditionnement de la poudre d' $\text{UO}_2$ , par exemple par des homogénéisations plus ou moins poussées, par atomisation séchage suivi éventuellement d'opérations de pré-compactage et granulation, ces opérations étant elles-même suivies d'une ou plusieurs étapes de broyage et/ou de tamisage. Ces procédés sont donc complexes et nécessitent de nombreuses étapes pour le conditionnement de la poudre d' $\text{UO}_2$  et pour son mélange aux additifs.

Comme indiqué plus haut, dans le cas de la fabrication des combustibles principalement à base d'oxyde d'uranium  $\text{UO}_2$ , on réalise généralement un mélange de poudre d' $\text{UO}_2$  et d' $\text{U}_3\text{O}_8$  (ou  $\text{U}_3\text{O}_7$ ) dans une proportion de 80/20 ou de préférence 90/10. Les oxydes  $\text{U}_3\text{O}_8$  utilisés peuvent être obtenus directement par le procédé voie sèche en réglant les conditions dans lesquelles on réalise la pyrohydrolyse de l' $\text{UF}_6$  par la vapeur d'eau. L' $\text{U}_3\text{O}_8$  ou l' $\text{U}_3\text{O}_7$  peuvent être également obtenus par oxydation d'une poudre d' $\text{UO}_2$  à basse température. Les oxydes  $\text{U}_3\text{O}_8$  ou  $\text{U}_3\text{O}_7$  peuvent être ajoutés à la poudre de départ ou dans les mélangeurs de l'atelier de pastillage avant l'étape de précompactage.

D'autres additifs utilisés pour modifier la microstructure des pastilles combustibles tels que l'oxyde de chrome, l'alumine, la silice, les oxydes de vanadium et de niobium ou d'autres composés peuvent être incorporés et mélangés au dioxyde d'uranium obtenu par voie sèche, à différentes étapes du procédé qui nécessitent dans tous les cas la préparation d'une matière particulière de caractéristiques voulues pour la fabrication des pastilles crues. Ces opérations d'incorporation et de mélange peuvent compliquer encore la préparation de la matière particulière.

Il est généralement nécessaire également d'utiliser des lubrifiants dans certaines étapes du procédé, par exemple avant le pré-compactage et



avant la compression de la matière particulaire sous forme de pastilles crues.

De manière générale, les opérations qui doivent être mises en œuvre préalablement à la fabrication des pastilles crues sont nombreuses et complexes, en particulier dans le cas où l'on utilise de l'oxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  peu ou pas coulable et fin obtenu par un procédé voie sèche, de tels procédés devant se substituer au procédé voie humide.

Le but de l'invention est donc de proposer un procédé de fabrication de pastilles de combustible nucléaire par frittage d'une matière contenant du dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  obtenue à partir d'une poudre issue d'un procédé de conversion d'hexafluorure d'uranium  $\text{UF}_6$  qui permette de simplifier les opérations nécessaires pour obtenir une matière granulaire contenant le dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  ayant des propriétés adéquates pour la fabrication de pastilles crues soumises ensuite au frittage.

Dans ce but, on introduit dans une cuve renfermant des corps mobiles de compression et de mélange, la poudre obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $\text{UF}_6$  et on réalise une agitation de la cuve de telle sorte que la poudre se déplace dans le volume de la cuve, suivant trois axes non coplanaires, de manière à être comprimée entre les corps mobiles et entre les corps mobiles et les parois de la cuve jusqu'à former une matière particulaire d'une densité accrue par rapport à la densité de la poudre obtenue par le procédé de conversion et on utilise la matière particulaire directement obtenue par agitation dans la cuve pour la mise en forme par compactage de pastilles de combustible crues qui sont soumises au frittage.

Le procédé suivant l'invention peut comporter de manière isolée ou en combinaison les caractéristiques suivantes :

- on soumet la cuve à un mouvement vibratoire tridimensionnel ;
- la matière particulaire obtenue par agitation dans la cuve et qui est utilisée pour la mise en forme des pastilles crues a une densité au moins égale à  $1,7 \text{ g/cm}^3$  ;
- la poudre introduite dans la cuve est obtenue par un procédé de conversion voie sèche et présente une densité inférieure à  $1 \text{ g/cm}^3$  et la

densité de la matière particulaire obtenue par agitation dans la cuve est d'environ  $2 \text{ g/cm}^3$  ;

5 - la poudre obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $\text{UF}_6$  présente une densité inférieure à  $1 \text{ g/cm}^3$  et une coulabilité nulle définie par un essai standard de passage à travers un orifice de 15 mm, et la matière particulaire obtenue par agitation dans la cuve présente une coulabilité supérieure à 10 g/s après quelques minutes d'agitation dans la cuve ;

10 - on réalise l'agitation de la cuve contenant les corps mobiles et la poudre obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $\text{UF}_6$ , pendant une durée de 1 à 600 minutes ;

- les corps mobiles de compression et de mélange dans la cuve sont des corps libres ayant une forme géométrique quelconque simple et une surface de rugosité faible ;

15 - les corps mobiles sont de forme cylindrique ;

- les corps mobiles ont la forme de billes sensiblement sphériques ;

- les corps mobiles sont en l'un des matériaux suivants : alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3$  frittée, oxyde d'uranium fritté, oxyde de zirconium fritté pur ou dopé, carbure de Tungstène, aciers, Uranium métal ou alliage Uranium/Titane ;

20 - on introduit dans la cuve, avant de réaliser l'agitation de la cuve, avec la poudre de dioxyde d'Uranium  $\text{UO}_2$  obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $\text{UF}_6$ , au moins un additif constitué par au moins un porogène dans une proportion au moins égale à 0,01% ;

25 - on introduit dans la cuve, avec la poudre de dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $\text{UF}_6$ , au moins un additif ;

- l'additif est introduit dans la cuve avant de réaliser le traitement par agitation de la cuve ;

30 - l'additif est introduit dans la cuve au cours du traitement par agitation de la cuve ;

- l'additif est constitué par l'une au moins des substances suivantes : oxyde d'uranium  $\text{U}_3\text{O}_8$ , oxyde d'uranium  $\text{U}_3\text{O}_7$ , oxyde de plutonium  $\text{PuO}_2$ ,

oxyde de thorium  $\text{ThO}_2$ , oxyde de gadolinium  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ , substance porogène, lubrifiant, agents dopants du frittage ;

5 - pour la fabrication de pastilles de combustible mixte oxyde d'uranium - oxyde de plutonium (MOX), la cuve est placée dans une enceinte de confinement telle qu'une boîte à gant et on réalise l'introduction de poudres d'oxyde d'uranium, d'oxyde de Plutonium et d'additifs, dans la cuve et l'agitation de la cuve, de manière commandée depuis l'extérieur de l'enceinte de confinement.

10 Afin de bien faire comprendre l'invention, on va décrire plusieurs exemples de réalisation du procédé de l'invention ainsi que des moyens particuliers utilisés pour sa mise en œuvre.

L'un des aspects fondamentaux du procédé suivant l'invention est qu'il permet de passer en une seule opération de compression et de mélange d'un produit de départ obtenu directement par un procédé de conversion d' $\text{UF}_6$  à un matériau particulaire qui peut être utilisé directement pour la fabrication de pastilles crues par compression dans des presses utilisées habituellement pour la fabrication des pastilles crues.

Le produit de départ est une poudre d'oxyde d'uranium renfermant principalement  $\text{UO}_2$  obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure d'uranium  $\text{UF}_6$  et plus particulièrement par un procédé de conversion voie sèche. Une telle poudre obtenue à la sortie de l'installation de conversion présente une composition qui peut être définie de manière générale sous la forme  $\text{UO}_{2+x}$ , cette poudre renfermant principalement de l' $\text{UO}_2$  et des quantités moindres qui peuvent être réglées d'autres oxydes tels qu' $\text{U}_3\text{O}_8$  et  $\text{U}_3\text{O}_7$ . La poudre obtenue en sortie de l'installation de conversion est constituée de cristallites ayant une dimension de  $0,1 \mu\text{m}$  à  $0,4 \mu\text{m}$  qui sont partiellement agglomérées entre elles, sous forme d'agrégats plus ou moins fragiles de tailles moyennes généralement comprise entre  $0,5$  et  $20$  micromètres. La densité de cette poudre est toujours inférieure à  $2\text{g/cm}^3$  ou même à  $1,5 \text{g/cm}^3$  et plus couramment inférieure à  $1 \text{g/cm}^3$  et de l'ordre de  $0,7$  à  $0,9 \text{g/cm}^3$ . Une telle poudre présente une coulabilité définie par un essai standard de passage à travers un orifice de  $15 \text{mm}$  d'un récipient conique et représentée par une valeur de débit en g/seconde ayant

une valeur nulle, la poudre ne pouvant s'écouler à travers l'orifice dans le cadre de l'essai standard.

Toutes les densités indiquées dans le présent texte (sauf indication contraire) sont des densités apparentes mesurées en utilisant un essai normalisé.

Une telle poudre de départ à faible densité, faible granulométrie et coulabilité nulle ne peut être utilisée dans un procédé de fabrication de pastilles crues, sans transformation.

Le produit de départ, lorsqu'il est constitué par exemple par une poudre d'oxyde  $UO_2$  obtenue par voie humide est également impropre à la fabrication de pastilles crues sans transformation intermédiaire.

Le procédé de l'invention qui ne comporte qu'une seule étape pour passer de la poudre de départ qui a été définie plus haut à une matière particulaire pouvant être comprimée sous forme de pastilles crues est mis en œuvre dans une cuve dans laquelle on introduit la poudre de départ et éventuellement des additifs, comme il sera expliqué plus loin. La cuve utilisée présente généralement une paroi en acier revêtue intérieurement par une couche de matière organique synthétique, par exemple du polyuréthane, pour limiter ou supprimer les risques d'abrasion de la paroi de la cuve et la contamination des produits introduits dans la cuve. La paroi de la cuve présente généralement une forme de révolution autour d'un axe, par exemple une forme cylindrique ou une forme toroïdale. La cuve contient des corps mobiles de compression et de mélange qui sont de préférence libres à l'intérieur de la cuve et / ou qui peuvent être également reliés à la cuve mais de manière à pouvoir se déplacer.

La cuve est montée mobile sur un support et comporte des moyens de déplacement permettant de réaliser une agitation telle que les matériaux contenus dans la cuve, par exemple la poudre et les corps mobiles de compression et de mélange, se déplacent dans tout le volume de la cuve suivant un déplacement tridimensionnel, c'est-à-dire dont les vecteurs de déplacement présentent des composantes suivant trois axes non coplanaires de l'espace. Les déplacements des matières à l'intérieur de la cuve peuvent être provoqués uniquement par l'agitation de la cuve ou à la fois par le mou-

vement de la cuve et par des éléments releveurs placés à l'intérieur de la cuve.

5 Les corps mobiles disposés à l'intérieur de la cuve sont généralement réalisés en un métal ou alliage dur ou en une matière céramique. De préférence, ces corps mobiles sont en alumine ou en oxyde d'uranium fritté, de manière à obtenir la dureté voulue pour éviter une contamination de la poudre d'oxyde d'uranium par des produits susceptibles de détériorer les propriétés de la poudre ou des pastilles de combustible.

10 Les corps mobiles de compression et de mélange disposés dans la cuve peuvent présenter des formes très diverses, telles que des formes cylindriques, sphériques ou cubiques ; ces corps mobiles peuvent être constitués par exemple par des boulets, des anneaux, des billes, des cubes, des cylindres ayant des extrémités planes ou hémisphériques ou des galets ou des corps de toute autre forme.

15 La capacité de la cuve peut être largement variable, sans altérer les conditions de mise en œuvre du procédé. La capacité de la cuve peut aller de quelques kilos à plusieurs centaines de kilos et même jusqu'à plusieurs tonnes, la capacité de la cuve correspondant à la masse maximale d'éléments qu'elle peut contenir (poudre et corps mobiles).

20 Compte tenu de la capacité de la cuve, certains paramètres sont à régler pour obtenir un rendement optimal de la transformation de la poudre d'oxyde d'uranium en matière particulaire pour la fabrication de pastilles crues. Ces paramètres sont en particulier le taux de remplissage en corps mobiles qui se définit comme le rapport entre le volume total des corps mo-  
25 biles et le volume utile de la cuve, le taux de remplissage en poudre qui se définit comme le rapport entre le volume total de la poudre introduite dans la cuve et le volume utile de la cuve ainsi que le coefficient de remplissage poudre/corps mobiles qui se définit comme le rapport entre le volume total de la poudre introduite dans la cuve et le volume de vide entre les corps  
30 mobiles, lorsque la cuve est au repos.

De manière générale, on réalise le remplissage de la cuve, de manière à recouvrir l'ensemble des corps mobiles et à remplir les espaces entre

les corps mobiles. D'autres conditions de remplissage sont également possibles.

De préférence, la cuve renfermant les corps mobiles est montée sur un support fixe de manière à pouvoir être mise en vibration et comporte des  
5        moyens moteurs de mise en vibration généralement constitués par un moteur à balourd.

Dans un mode de réalisation particulier qui a donné satisfaction, pour la fabrication d'une matière particulaire à partir de poudre d' $\text{UO}_2$  obtenue par conversion voie sèche, on a utilisé un broyeur commercialisé sous la référence DM1 par la société SWECO.  
10

La cuve du broyeur comporte une paroi de forme toroïdale montée avec son axe de révolution vertical sur un support fixe, par l'intermédiaire de ressorts d'appui hélicoïdaux à axe vertical. Un moteur de mise en vibration est monté solidaire de la paroi de la cuve, avec son axe suivant l'axe vertical  
15        de la cuve. Le moteur est associé à des balourds, si bien que, lorsqu'il est mis en rotation, il entraîne la cuve dans un mouvement vibratoire oscillant tridimensionnel, l'axe de la cuve subissant à la fois un mouvement tournant et oscillant. La cuve renferme des corps mobiles libres qui peuvent être par exemple de forme sphérique ou cylindrique ou plus complexes sur lesquels  
20        on déverse la poudre à traiter, avant de mettre en fonctionnement le moteur d'agitation de la cuve. Les corps mobiles libres et la poudre se déplacent sous l'effet des mouvements et des vibrations de la cuve, suivant des trajectoires à trois dimensions remplissant une partie substantielle du volume intérieur de la cuve. Pendant les déplacements des corps mobiles libres et de la  
25        poudre sous l'effet des déplacements et des vibrations de la cuve, la poudre est comprimée entre les corps mobiles et entre les corps mobiles et les parois de la cuve.

De manière inattendue, lorsqu'on introduit dans le broyeur DM1 SWECO une poudre d'oxyde d'uranium provenant d'un procédé de conversion voie sèche d' $\text{UF}_6$ , on observe une augmentation continue de la granulométrie de la poudre au cours du temps. Le dispositif SWECO est désigné  
30        par son constructeur comme un broyeur vibrant permettant de réduire la granulométrie de matière particulaire ou de poudre jusqu'à des dimensions

sub-microniques allant jusqu'à 0,5  $\mu\text{m}$ . Le traitement dans ce dispositif connu de poudre de conversion voie sèche de densité voisine de 0.8g/cm<sup>3</sup>, comportant des cristallites de 0,1  $\mu\text{m}$  à 0,4  $\mu\text{m}$  plus ou moins liées sous forme d'amas permet d'obtenir, par compression entre les corps mobiles, des particules dont la granulométrie au cours du temps devient homogène et se situe entre 10  $\mu\text{m}$  et 150  $\mu\text{m}$ . La densité de la poudre augmente de manière continue avec le temps de traitement à l'intérieur de la cuve renfermant les corps mobiles jusqu'à atteindre, en une durée de l'ordre d'une à deux heures, une valeur de l'ordre de 2 g/cm<sup>3</sup>. La coulabilité de la poudre de conversion voie sèche est nulle, comme indiqué plus haut, et, après quelques minutes de traitement dans la cuve renfermant les corps mobiles qui est soumise aux vibrations, la coulabilité des particules devient supérieure à 10 g/sec et peut atteindre très rapidement des valeurs très supérieures jusqu'à 60 g/sec et plus (valeurs mesurées avec le dispositif mentionné ci-dessus).

La matière particulaire obtenue après une à deux heures de traitement et, dans certains cas, jusqu'à 150 minutes, dans la cuve renfermant les corps mobiles peut être utilisée directement pour la fabrication de pastilles crues par compression, du fait de sa densité, de sa coulabilité et de sa compressibilité due entre autres à la forme des particules obtenues et à leur granulométrie.

En outre, le traitement à l'intérieur de la cuve en vibration contenant les corps mobiles permet de réaliser en même temps un mélange intime des poudres d'oxyde d'uranium obtenues par le procédé de conversion voie sèche et d'additifs tels que  $\text{PuO}_2$ ,  $\text{ThO}_2$ ,  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  et  $\text{Er}_2\text{O}_3$  ou encore des agents porogènes tels que des matières organiques ou minérales susceptibles d'être détruites pendant le frittage ou des lubrifiants tels que le stéarate de zinc ou d'aluminium ou l'éthylène bistéaramide ou d'agents dopants destinés à modifier la structure cristalline des pastilles frittées. On peut réaliser l'incorporation au mélange, à l'intérieur de la cuve, de tout autre additif tel que mentionné plus haut permettant de modifier la structure et la composition des pastilles.

On peut également ajouter au mélange des lubrifiants ayant également un effet porogène et destinés à remplacer les agents porogènes classiques tels que le produit connu sous l'appellation AZB ou l'oxalate d'ammonium ou ses dérivés.

5 L'incorporation des additifs à la poudre d'oxyde (comportant généralement  $\text{UO}_2$  et  $\text{U}_3\text{O}_8$ ) peut être effectuée totalement ou partiellement au moment du chargement de la cuve avant le démarrage du traitement ou en cours de traitement à un instant bien déterminé.

10 De préférence, le ou les lubrifiants sont ajoutés sur les grains déjà formés et non dans la poudre de départ, car l'effet lubrifiant est alors maximum lors de l'étape ultérieure de compactage. On peut ajouter le ou les produits lubrifiants dans la cuve dans une seconde partie du traitement ou vers la fin du traitement, par exemple après une heure de traitement dans la cuve. Une agitation supplémentaire de quelques minutes de la poudre et  
15 des corps mobiles à l'intérieur de la cuve permet de répartir correctement le ou les lubrifiants à la surface des grains. On facilite ainsi les opérations de fabrication des pastilles à l'état cru, ce qui permet d'utiliser un matériel simplifié et de réduire la durée des opérations.

20 Le procédé suivant l'invention permet de réaliser la fabrication de combustible contenant principalement de l'oxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  et d'autres matériaux, par exemple des produits neutrophages comme l'oxyde de gadolinium ou d'erbium ou des matériaux combustibles fissiles tels que l'oxyde de plutonium ou encore des produits fertiles tels que l'oxyde de thorium. Ces produits sont ajoutés dans la cuve, au moment voulu pour réaliser une  
25 bonne intégration de ces matériaux aux particules formées à partir des oxydes d'uranium de la poudre obtenue par conversion de l' $\text{UF}_6$ .

30 Dans le cas de matériaux toxiques et/ou radioactifs, tels que l'oxyde de plutonium, il est bien sûr nécessaire de prendre les précautions connues de l'homme de l'art. Toutefois, la mise en œuvre du procédé suivant l'invention qui permet d'obtenir la matière particulaire pour la fabrication des pastilles crues, en une seule opération à l'intérieur d'une seule cuve renfermant des corps mobiles de compression permet de réaliser facilement ces opérations sans risque pour les opérateurs, en plaçant la cuve à l'intérieur d'une



enceinte protectrice telle qu'une boîte à gants, les opérations de constitution de la charge, d'addition et de mise en vibration de la cuve pouvant être commandées depuis l'extérieur de la boîte à gants.

5 Dans le cas d'un mode de réalisation préférentiel, les corps mobiles de compression et de mélange sont totalement libres à l'intérieur de la cuve et constituent une partie de la charge introduite dans la cuve. Dans ce cas, on introduit successivement dans la cuve les corps de compression, par exemple des billes ou des cylindres, dans une quantité prédéterminée. On introduit ensuite la poudre provenant directement du procédé de conversion  
10 d' $\text{UF}_6$  et éventuellement différents additifs. On met ensuite la cuve en mouvement et de préférence en mouvement de vibrations. Les corps mobiles restent en permanence dans la cuve, le produit traité est évacué au travers d'une grille situé à la base de la cuve

Selon un mode de réalisation préférentiel, les corps mobiles à l'inté-  
15 rieur de la cuve sont en alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3$  de grande dureté. Lors de la mise en œuvre du procédé de l'invention, l'énergie cinétique communiquée aux corps mobiles assurant la compression de la poudre est modérée, de sorte que l'énergie mise en œuvre lors du choc des corps mobiles entre eux et sur les parois de la cuve est réduite. Les corps mobiles de compression et de mé-  
20 lange subissent donc des destructions très limitées et, de ce fait, la contamination des poudres par des matériaux provenant des corps mobiles de compression est faible. En outre, l'introduction de faibles quantités d'alumine dans les pastilles de combustible ne présente pas d'inconvénient, l'aluminium pouvant même apporter des effets bénéfiques. Les mesures réalisées  
25 indiquent en outre que cette contamination par l'aluminium n'excède pas quelques parties par million

Lorsqu'on utilise des corps mobiles en oxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  fritté à la place d'alumine, on supprime totalement le risque de contamination par des éléments qui ne se trouveraient pas dans la poudre d'oxyde d'uranium. En  
30 outre, on réduit le temps de traitement en augmentant l'énergie cinétique due à la densité élevée des corps en oxyde d'uranium fritté (densité théorique  $10,96 \text{ g/cm}^3$ ). Toutefois, l'introduction d'uranium sous forme d'oxyde d'uranium fritté dans la poudre, du fait d'une certaine détérioration des corps

mobiles, réduit sensiblement la frittabilité du mélange, et n'apporte pas d'autres avantages substantiels, .

Afin de bien faire comprendre l'invention, on va décrire quelques exemples de réalisation dont les résultats seront rapportés dans les tableaux annexés.

Quatre exemples de mise en œuvre de l'invention seront décrits ci-après comme exemples n°s 1, 2, 3 et 4 ainsi qu'un exemple comparatif.

L'étape caractéristique du procédé de l'invention consistant à traiter des poudres obtenues directement par un procédé de conversion voie sèche dans une cuve renfermant des corps mobiles, pour obtenir une matière particulaire pouvant être utilisée pour la fabrication de pastilles crues est mise en œuvre dans un broyeur vibrant commercialisé sous la référence DM1 par la société SWECO.

Dans le cas des quatre exemples de réalisation, la cuve du broyeur de forme toroïdale à axe vertical renferme 20 kg de corps mobiles constitués par des cylindres d'alumine frittée de 1/2" (12,7 mm) environ de diamètre et de longueur. Pour la mise en œuvre du traitement, la poudre est déversée sur les corps mobiles de compression totalement libres à l'intérieur de la cuve. On met ensuite la cuve en mouvement de vibration par alimentation du moteur à balourd fixé à la cuve.

#### Exemple 1

On introduit dans la cuve contenant les corps mobiles en alumine frittée, 5 kg d'un mélange de poudres  $\text{UO}_2/\text{U}_3\text{O}_8$  obtenues par un procédé de conversion voie sèche, dans une proportion pondérale relative de 92/8. La poudre a une densité de  $0,8 \text{ g/cm}^3$  et n'est pas coulable à travers un orifice de 15 mm selon l'essai standard. On ajoute à la poudre, à l'intérieur de la cuve du mélangeur, 0,4 % en poids d'un produit porogène AZB et 0,3 % en poids d'un lubrifiant constitué par du stéarate de zinc. On met la cuve en mouvement de vibrations et l'on effectue des prélèvements de la poudre ou de la matière particulaire formée au cours du traitement, après respectivement, 10, 15, 30, 60, 120 et 150 minutes de traitement.

On mesure, sur chacun des prélèvements, la densité de la matière à l'état non tassé (DNT) et à l'état tassé (DT). On mesure également la coula-

bilité de la matière par introduction dans un récipient conique comportant un orifice de 15 mm de diamètre. Les coulabilités sont mesurées en g/seconde.

Les résultats sont reportés dans le tableau 1 ci-dessous.

TABLEAU 1

ESSAIS	Mode de remplissage : 20 kg de média broyant (11x13 mm) en alumine								
N° 1	Temps de traitement	min	0	10	15	30	60	120	150
Densité	DNT	g/cm <sup>3</sup>	0.8	1.2	1.3	1.6	1.7	1.9	2.0
	DT	g/cm <sup>3</sup>	1.3	1.7	1.8	2.0	2.3	2.4	2.5
Coulabilité	Cône 15 mm	g/s	0	50	49	56	59	63	65

5 On peut voir que la densité du matériau traité passe de la valeur 0,8 g/cm<sup>3</sup> qui est la densité de départ de la poudre UO<sub>2</sub>/ U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> provenant d'un procédé voie sèche à une valeur de 2g/cm<sup>3</sup> après 150 minutes de traitement. Les valeurs de la densité à l'état tassé correspondantes sont de 1,3 et 2,5 g/cm<sup>3</sup>.

10 Après une heure de traitement, la densité à l'état non tassé est proche de 1,8 g/cm<sup>3</sup>.

La coulabilité augmente très rapidement dès les premières minutes du traitement puis beaucoup plus lentement pour atteindre une valeur de 65 g/s après 150 minutes de traitement. Après une heure de traitement la  
15 coulabilité est proche de 60 g/s. Une coulabilité suffisante de la poudre (supérieure à 10 g/s) est obtenue dans tous les cas après une très courte durée de traitement.

La matière particulaire obtenue peut donc être facilement mélangée à des additifs et par exemple à des oxydes tels que l'oxyde de plutonium ou  
20 de thorium.

La matière granulaire obtenue en fin de traitement a été utilisée pour obtenir des pastilles crues qui présentent une bonne résistance mécanique, le remplissage et la compression des matrices de formage de pastilles crues étant facilités par la coulabilité de la matière particulaire et par la présence  
25 de lubrifiant sur les particules, le lubrifiant ayant été ajouté dès la constitution de la charge dans la cuve de traitement.

Un essai avec la même poudre d'oxyde mais avec ajout du lubrifiant en fin de traitement a conduit aux mêmes résultats de densité , de coulabilité (après 2 heures de traitement) et de compactage / frittage ce qui montre bien les larges possibilités du procédé selon l'invention. Ces résultats de l'essai dépendent également des conditions de réglage des balourds du moteur du broyeur DM1 et de la nature des corps broyants.

### Exemple 2

On introduit dans la cuve contenant les corps mobiles en alumine 5 kg de poudre de dioxyde d'uranium  $UO_2$  obtenu par voie sèche dont la densité est de  $0,9 \text{ g/cm}^3$ , cette poudre obtenue directement par le procédé de conversion d' $UF_6$  n'étant pas coulable à travers un orifice de 15 mm. On n'introduit dans la charge de poudre d' $UO_2$  ni produit porogène ni lubrifiant et on démarre le traitement en mettant en mouvement de vibrations la cuve contenant la charge.

On prélève du matériau particulaire en cours de traitement après, respectivement, 10, 15, 30, 60 et 120 minutes, le traitement prenant fin après 120 minutes.

On a mesuré les densités et la coulabilité de la matière particulaire, comme précédemment par tamisage, et les résultats sont reportés au tableau 2 ci-dessous.

TABLEAU 2

ESSAIS	Mode de remplissage : 20 kg de média broyant (11x13 mm) en alumine								
N° 2	Temps de traitement	min	0	10	15	30	60	120	
Densité	DNT	$\text{g/cm}^3$	0.9	1.3	1.3	1.5	1.8	2.1	
	DT	$\text{g/cm}^3$	1.6	1.9	1.9	2.1	2.4	2.6	
Coulabilité	Cône 15 mm	$\text{g/s}$	0	0	42	58	66	79	

La densité à l'état non tassé passe de la valeur  $0,9 \text{ g/cm}^3$  à la valeur  $2,1 \text{ g/cm}^3$  au cours des deux heures de traitement. La coulabilité augmente brusquement après 15 minutes de traitement pour atteindre une valeur de 79 g/s à la fin du traitement.

La matière particulaire obtenue dans le cas de l'exemple n° 2 présente des caractéristiques de densité et de coulabilité légèrement supérieu-

res à celles de la poudre obtenue dans l'exemple n° 1. La présence de lubrifiant et de porogène au début du traitement dans le cas de l'exemple n° 1 ne semble toutefois pas un obstacle à l'obtention d'une matière particulaire ayant de bonnes caractéristiques.

- 5 Comme précédemment, on réalise une compression de la matière particulaire obtenue à l'issue du traitement dans des matrices permettant d'obtenir des pastilles crues. Pour réaliser cette opération, on mélange avec les particules un lubrifiant permettant de faciliter la compression des particules sous la forme de pastilles crues. (Avant de réaliser la compression, on
- 10 ajoute éventuellement un porogène à la matière particulaire pour régler la densité des pastilles frittées à une valeur voulue.)

### Exemple n° 3

TABLEAU 3

ESSAIS	Mode de remplissage : 20 kg de média broyant (11x13 mm) en alumine								
N° 3	Temps de traitement	min	0				60		
Densité	DNT	g/cm <sup>3</sup>	1.1				2.1		
	DT	g/cm <sup>3</sup>	1.8				2.6		
Coulabilité	Cône 15 mm	g/s	0				65		

- On charge dans la cuve renfermant les corps de compression sous
- 15 forme de cylindres 4 kg d'une poudre de dioxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  obtenue par voie sèche, de densité  $0,8 \text{ g/cm}^3$ , cette poudre n'étant pas coulable à travers un orifice de 15 mm, puis 2 kg d'un mélange d'oxydes d'uranium renfermant 25 % d'oxyde de gadolinium ( $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ) ainsi que 36 g de produit porogène constitué par une substance organique. On arrête le traitement après une
- 20 heure, la poudre constituée par le mélange d'uranium et d'oxyde de gadolinium qui avait une densité de  $1,1 \text{ g/cm}^3$  au moment du démarrage du traitement présente, après une heure de traitement, une densité de  $2,1 \text{ g/cm}^3$ . Cette poudre présente une bonne coulabilité de 65 g/s.

- On ajoute à la poudre 18 g d'un lubrifiant constitué de stéarate de zinc
- 25 et on effectue un traitement supplémentaire de 15 minutes. La matière particulaire mélangée au lubrifiant est ensuite directement compactée et mise

sous forme de pastilles crues qui sont ensuite frittées par le procédé habituel.

Un essai avec la même poudre d'oxyde mais avec ajout du lubrifiant avant le début du traitement a conduit aux mêmes résultats de densité , de coulabilité et de compactage / frittage ce qui montre bien les larges possibilités du procédé selon l'invention.

#### Exemple n° 4

TABLEAU 4

ESSAIS	Mode de remplissage : 20 kg de média broyant (11x13 mm) en alumine								
N° 4	Temps de traitement	min	0				60	80	
Densité	DNT	g/cm <sup>3</sup>	0.9				1.9	2.05	
	DT	g/cm <sup>3</sup>	1.6				2.4	2.6	
Coulabilité	Cône 15 mm	g/s	0				60	85	

On introduit dans la cuve renfermant les corps mobiles de compression sous forme de cylindres d'alumine 5 kg d'une poudre de dioxyde d'uranium  $UO_2$  obtenue directement par un procédé de conversion voie sèche ayant une densité de  $0,9 \text{ g/cm}^3$  non coulable à travers un orifice de 15 mm, ainsi que 0,64 % en poids d'un produit porogène constitué par un matériau organique puis on met la cuve en mouvement de vibrations pendant une durée de 80 minutes. A l'issue du traitement, la poudre d' $UO_2$  présente une densité de  $2,05 \text{ g/cm}^3$  et  $2.6 \text{ g/cm}^3$  respectivement, à l'état non tassé et tassé, et une coulabilité de 85 g/s.

On ajoute à la poudre 0,3 % en poids d'un produit lubrifiant constitué d'éthylène bistéaramide et l'on reprend le traitement pendant une durée de 15 minutes en mettant la cuve en vibrations. La matière particulaire obtenue est ensuite directement compactée dans le procédé habituel de fabrication de pastilles crues. Après frittage, on obtient des pastilles de combustible conformes aux besoins et aux spécifications habituelles. La densité des pastilles peut être réglée par ajout d'un porogène avant la phase de traitement ou en utilisant un lubrifiant qui soit également un porogène.

Le même essai a été repris en ajoutant le produit lubrifiant ( 0.3 % d'éthylène bistéaramide ) avant le début du traitement. Il a conduit aux mê-

mes résultats de densité , de coulabilité et de compactage / frittage ce qui montre bien les larges possibilités du procédé selon l'invention.

Un essai avec le même mélange d'oxydes d'uranium auquel a été rajouté de l'éthylène bistéaramide en remplacement du porogène précédemment utilisé a conduit également aux mêmes résultats. On a pu noter l'effet accélérateur de densification de l'éthylène bistéaramide qui s'est comporté comme un véritable liant organique (la même densité a été obtenue en 45 min au lieu de 60 min ). Cet effet bénéfique sera évidemment recherché en fabrication

#### 10 Exemple comparatif

On introduit une poudre d'oxyde d'uranium  $UO_2$  obtenue directement par le procédé de conversion voie sèche dont la densité à l'état non tassé est de  $0,85 \text{ g/cm}^3$  dans un broyeur à couteaux tel qu'utilisé pour le traitement des poudres dans l'atelier de conversion, selon le procédé de l'art antérieur.

15 A l'issue du traitement dans le broyeur à couteaux, la densité de la poudre n'a pas changé ou a même légèrement diminué pour atteindre une valeur de  $0,8 \text{ g/cm}^3$ . La coulabilité de la poudre qui était nulle au départ reste nulle à l'issue du traitement dans le broyeur à couteaux.

Les exemples selon l'invention montrent donc que le procédé suivant l'invention mettant en œuvre une cuve d'agitation renfermant des corps mobiles et de préférence des corps mobiles libres permet d'augmenter sensiblement la densité d'une poudre obtenue par un procédé de conversion voie sèche, pour atteindre une valeur proche de ou légèrement supérieure à  $2 \text{ g/cm}^3$ . En outre, le traitement permet d'obtenir une matière particulaire ayant une très bonne coulabilité qui peut être facilement mise sous forme de pastilles crues, par les procédés habituels.

Les pastilles crues frittées ont des propriétés qui sont celles des pastilles combustibles fabriquées par les procédés suivant l'art antérieur.

En outre, les essais effectués montrent qu'on peut adjoindre des additifs aux poudres d'oxyde d'uranium obtenues par le procédé voie sèche, soit avant le démarrage du traitement dans la cuve, soit en cours de traitement, soit à l'issue du traitement dans la cuve. Il est généralement nécessaire, lorsqu'on utilise des porogènes organiques d'introduire plus de 0,1 % en

5 poids de porogène dans la cuve de traitement avec l'oxyde d'uranium et  
 dans tous les cas plus de 0,01 %. Chaque additif ou autre produit ayant son  
 propre effet porogène, connaissant la densité finale à obtenir et la densité  
 frittée de la matrice sans additifs, on calcule la quantité d'additifs et de poro-  
 10 gène à ajouter pour obtenir la densité frittée visée. Le procédé suivant l'in-  
 vention qui ne comporte qu'une seule étape pour passer de la poudre  
 d'oxyde d'uranium obtenue par un procédé de conversion d'hexafluorure  
 d'uranium à une matière particulaire qui peut être mise sous forme de pastil-  
 les crues, au lieu de sept étapes dans le cas du procédé antérieur, permet  
 une simplification considérable des procédures et des matériels utilisés pour  
 la fabrication du combustible nucléaire.

L'invention s'applique à la fabrication de pastilles de combustible de  
 compositions extrêmement variées.



# REVENDEICATIONS

- 1.- Procédé de fabrication de pastilles de combustible nucléaire par frittage d'une matière contenant du dioxyde d'uranium  $UO_2$  obtenue à partir d'une poudre issue d'un procédé de conversion d'hexafluorure d'uranium  $UF_6$ , caractérisé par le fait qu'on introduit, dans une cuve renfermant des corps mobiles de compression et de mélange, la poudre obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $UF_6$  et qu'on réalise une agitation de la cuve de telle sorte que la poudre se déplace dans le volume de la cuve suivant trois axes non coplanaires, de manière à être comprimée entre les corps mobiles et entre les corps mobiles et les parois de la cuve jusqu'à former une matière particulaire d'une densité accrue par rapport à la densité de la poudre obtenue par le procédé de conversion, et qu'on utilise la matière particulaire directement obtenue par agitation dans la cuve pour la mise en forme de pastilles de combustible crues qui sont soumises au frittage.
- 2.- Procédé suivant la revendication 1, caractérisé par le fait qu'on soumet la cuve à un mouvement vibratoire tridimensionnel.
- 3.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 et 2, caractérisé par le fait que la matière particulaire obtenue par agitation dans la cuve et qui est utilisée pour la mise en forme des pastilles crues a une densité au moins égale à  $1,7 \text{ g/cm}^3$ .
- 4.- Procédé suivant la revendication 3, caractérisé par le fait que la poudre introduite dans la cuve est obtenue par un procédé de conversion voie sèche et présente une densité inférieure à  $1 \text{ g/cm}^3$  et que la densité de la matière particulaire obtenue par agitation dans la cuve est d'environ  $2 \text{ g/cm}^3$ .
- 5.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisé par le fait que la poudre obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $UF_6$  présente une densité inférieure à  $1 \text{ g/cm}^3$  et une coulabilité nulle définie par un essai standard de passage à travers un orifice de 15 mm, et que la matière particulaire obtenue par agitation dans la cuve présente une coulabilité supérieure à 10 g/s après quelques minutes d'agitation dans la cuve.

6.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisé par le fait qu'on réalise l'agitation de la cuve contenant les corps mobiles et la poudre obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $UF_6$ , pendant une durée de 1 à 600 minutes.

5 7.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 6, caractérisé par le fait que les corps mobiles de compression et de mélange dans la cuve sont des corps libres ayant une forme géométrique quelconque simple et une surface de rugosité faible.

10 8.- Procédé suivant la revendication 7, caractérisé par le fait que les corps mobiles sont de forme cylindrique.

9.- Procédé suivant la revendication 7, caractérisé par le fait que les corps mobiles ont la forme de billes sensiblement sphériques.

15 10.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 9, caractérisé par le fait que les corps mobiles sont en l'un des matériaux suivants : alumine  $Al_2O_3$  frittée, oxyde d'uranium fritté, oxyde de zirconium fritté pur ou dopé, carbure de Tungstène, aciers, Uranium métal ou alliage Uranium/Titane.

20 11.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 10, caractérisé par le fait qu'on introduit dans la cuve, avant de réaliser l'agitation de la cuve, avec la poudre de dioxyde d'Uranium  $UO_2$  obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $UF_6$ , au moins un additif constitué par au moins un porogène dans une proportion au moins égale à 0,01%.

25 12.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 11, caractérisé par le fait qu'on introduit dans la cuve, avec la poudre de dioxyde d'uranium  $UO_2$  obtenue directement par un procédé de conversion d'hexafluorure  $UF_6$ , au moins un additif.

13.- Procédé suivant la revendication 12, caractérisé par le fait que l'additif est introduit dans la cuve avant de réaliser le traitement par agitation de la cuve.

30 14.- Procédé suivant la revendication 13, caractérisé par le fait que l'additif est introduit dans la cuve au cours du traitement par agitation de la cuve.



15.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 12 à 14, caractérisé par le fait que l'additif est constitué par l'une au moins des substances suivantes : oxyde d'uranium  $U_3O_8$ , oxyde d'uranium  $U_3O_7$ , oxyde de plutonium  $PuO_2$ , oxyde de thorium  $ThO_2$ , oxyde de gadolinium  $Gd_2O_3$ , substance porogène, lubrifiant, agents dopants du frittage.

16.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 15, pour la fabrication de pastilles de combustible mixte oxyde d'uranium - oxyde de plutonium (MOX), caractérisé par le fait que la cuve est placée dans une enceinte de confinement telle qu'une boîte à gant et qu'on réalise l'introduction de poudres d'oxyde d'uranium, d'oxyde de Plutonium et d'additifs, dans la cuve et l'agitation de la cuve, de manière commandée depuis l'extérieur de l'enceinte de confinement.



reçue le 28/01/04

**BREVET D'INVENTION****CERTIFICAT D'UTILITÉ**

Code de la propriété Intellectuelle - Livre VI



N° 11235\*03

26 bis, rue de Saint Pétersbourg - 75800 Paris Cedex 08

Pour vous Informer : INPI DIRECT

N° Indigo 0 825 83 85 87

0,35 € TTC/mn

Télécopie : 33 (0)1 53 04 52 65

**DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S)** Page N° 1. / 2.

(À fournir dans le cas où les demandeurs et les inventeurs ne sont pas les mêmes personnes)

Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire

DB 113 @ W / 210103

**Vos références pour ce dossier (facultatif)**

BFF 03P0447

**N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL**

031268

**TITRE DE L'INVENTION** (200 caractères ou espaces maximum)

Procédé de fabrication de pastilles de combustible nucléaire.

**LE(S) DEMANDEUR(S) :**

SOCIETE FRANCO-BELGE DE FABRICATION DE COMBUSTIBLE - FBFC

**DESIGNE(NT) EN TANT QU'INVENTEUR(S) :**

<b>1</b> Nom		FEUGIER
Prénoms		André
Adresse	Rue	Quartier PILENE
	Code postal et ville	26300 CHATUZANGE LE GOUBET FRANCE
Société d'appartenance (facultatif)		
<b>2</b> Nom		de TOLLENAERE
Prénoms		Luc
Adresse	Rue	Postelarenweg 113
	Code postal et ville	2400 MOL BELGIQUE
Société d'appartenance (facultatif)		
<b>3</b> Nom		PERES
Prénoms		Véronique
Adresse	Rue	
	Code postal et ville	26300 HOSTUN FRANCE
Société d'appartenance (facultatif)		

S'il y a plus de trois inventeurs, utilisez plusieurs formulaires. Indiquez en haut à droite le N° de la page suivi du nombre de pages.

**DATE ET SIGNATURE(S)****DU (DES) DEMANDEUR(S)****OU DU MANDATAIRE**

(Nom et qualité du signataire)

Paris, le 29 octobre 2003

B. DOMENEGO  
n° 00-0500

BEST AVAILABLE COPY

reçue le 28/01/04



26 bis, rue de Saint Pétersbourg - 75800 Paris Cedex 08

Pour vous informer : INPI DIRECT

N° Indigo 0 825 83 85 87  
0,15 € TTC/mn

Télécopie : 33 (0)1 53 04 52 65

# BREVET D'INVENTION

## CERTIFICAT D'UTILITÉ

Code de la propriété intellectuelle - Livre VI



DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S) Page N° 2. / 2.

(À fournir dans le cas où les demandeurs et les inventeurs ne sont pas les mêmes personnes)

Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire

DB 113 © W / 210103

Vos références pour ce dossier (facultatif)		BFF 03P0447
N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL		057268
TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum)		
Procédé de fabrication de pastilles de combustible nucléaire.		
LE(S) DEMANDEUR(S) :		
SOCIETE FRANCO-BELGE DE FABRICATION DE COMBUSTIBLE - FBFC		
DESIGNE(NT) EN TANT QU'INVENTEUR(S) :		
1	Nom	CYSEN
	Prénoms	Marijn
Adresse	Rue	Geerkensstraat 27
	Code postal et ville	3910 NEERPELT BELGIQUE
Société d'appartenance (facultatif)		
2	Nom	
	Prénoms	
Adresse	Rue	
	Code postal et ville	
Société d'appartenance (facultatif)		
3	Nom	
	Prénoms	
Adresse	Rue	
	Code postal et ville	
Société d'appartenance (facultatif)		
S'il y a plus de trois inventeurs, utilisez plusieurs formulaires. Indiquez en haut à droite le N° de la page suivi du nombre de pages.		
DATE ET SIGNATURE(S) DU (DES) DEMANDEUR(S) OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire)		
Paris, le 29 octobre 2003 B. DOMENEGO n° 00-0500		

La loi n°78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique, aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.

BEST AVAILABLE COPY